

## 北海道産木香の調製法と化学的品質評価 (第2報) モッコウ根の部位及び収穫期の違いによる成分含量の変化

Preparation and Chemical Evaluation of Saussureae Radix Produced in Hokkaido (Part II)  
Content-variation of Some Constituents Due to Difference of Root Part  
and Harvesttime of *Saussurea lappa*

青柳 光敏      姉帯 正樹      畠山 好雄\*

Mitsutoshi AOYAGI, Masaki ANETAI and Yoshio HATAKEYAMA

In order to obtain elementary data to prepare marketable Saussureae Radix in Hokkaido, 2-year-old taproot and lateral root of *Saussurea lappa* were chemically evaluated by the contents of dilute ethanol-soluble extract, sugars (fructose and glucose) and essential oil components (costunolide and dehydrocostuslactone).

The tendency was observed that contents of constituents increased with an increase in root's diameters. The contents of constituents of taproot were higher than those of lateral root. Costunolide and dehydrocostuslactone contents of the roots harvested in spring were higher than those harvested in autumn. On the other hand, the dilute ethanol-soluble extract content of the roots harvested in autumn was higher than that harvested in following spring. The roots having above 50% of the dilute ethanol-soluble extract contents were hard to pulverize.

According to the contents of the constituents and the weather conditions in Hokkaido, we considered that the outdoor drying method of the taproot harvested in spring may be appropriate to produce marketable Saussureae Radix in Hokkaido.

Key words : Saussureae Radix (木香) ; *Saussurea lappa* (モッコウ) ; chemical evaluation (化学的品質評価) ; dilute ethanol-soluble extract (希エタノールエキス) ; sugar (糖)

### 緒 言

モッコウ木香は『神農本草経』の上品に蜜香と記載されている生薬であり、芳香性健胃薬、薫香料の原料などに使用されるほか、女神散などの漢方薬にも配合されている。その基原として第十四改正日本薬局方にはキク科のモッコウ *Saussurea lappa* CLARKE の根が収載されている<sup>1)</sup>。モッコウはインド、中国雲南省、四川省などで栽培されているが、ワシントン条約の規制対象植物になっている<sup>1,2)</sup>。このような状況から、国立衛生試験所(当時)北海道薬用植物栽培試験場は1981年に旧ソ連より種子を導入し、道内での栽培を試みた。その結果、国内でのモッコウ栽培が可能となった<sup>2-4)</sup>。北海道はモッコウの栽培に適していると考えられており、生産が期待されている。

中国では秋に掘上げ、自然乾燥しているが、北海道ではその気象条件を加味した独自の調製加工法が必要と考えられる。このため、筆者らは均一な太さのものが多数得られ

る側根を用いて調製加工法の基礎的検討を行い、その結果を既に報告した<sup>5)</sup>。一方、木香輸入品は主根を調製加工したものであり、国内試作品とは部位や根径に大きな違いが見られるが、主根と側根の化学的品質は比較されていない。そこで今回、国内で木香を生産するための基礎的データを得る目的で、2年生根を用いて、部位(主根、側根)、根径、収穫期別に自然乾燥を行い、各々の乾燥根について希エタノールエキス、糖(果糖、ブドウ糖)、薬理作用の報告されている<sup>1)</sup>精油の主成分 costunolide 及び dehydrocostuslactone を定量し、それらの含有量から品質を評価した。

### 方 法

#### 1. 試料の調製

北海道薬用植物栽培試験場(現 独立行政法人医薬基盤研究所薬用植物資源研究センター北海道研究部)圃場(名寄市)で採取したモッコウの種子を1995年5月11日に同圃場に播種し、直播栽培した。

2年生株を1996年10月17日及び1997年5月9日に

\*国立医薬品食品衛生研究所北海道薬用植物栽培試験場(当時)

Table 1 Contents of Dilute Ethanol-soluble Extract and Sugars of *Saussureae Radix*

Harvesttime Sample	Maximum taproot diameter (cm)		Dil. EtOH <sup>a)</sup> (%)						Sugar <sup>b)</sup> (%)				
	Lower	Upper	Lateral root (diameter)			Taproot			Lateral root (diameter)			Taproot	
			<1cm	1-2cm	2cm<	Lower	Upper		<1cm	1-2cm	2cm<	Lower	Upper
Oct. 17, 1996	A-1	1.7	7.4	25.6	48.2	52.4	39.2	64.3	9.6	15.2	20.7	11.9	43.0
	A-2	2.1	6.0	23.7	32.8	33.8	41.7	57.2	9.3	9.9	13.0	21.0	34.9
	A-3	2.8	9.0	24.5	36.1	39.4	54.9	60.9	9.7	11.4	17.5	27.6	35.5
	A-4	3.5	6.2	23.1	48.3	43.0	54.3	60.4	9.9	16.9	15.1	26.1	37.1
	Average	2.5	7.2	24.2	41.4	42.2	47.5	60.7	9.6	13.4	16.6	21.7	37.6
	SD	0.7	1.2	0.9	7.0	6.8	7.1	2.5	0.2	2.8	2.9	6.1	3.2
May 9, 1997	S-1	1.7	5.6	27.3	42.9	—	48.6	56.2	16.2	25.3	—	27.5	26.8
	S-2	3.5	5.8	30.3	41.0	39.8	36.5	51.1	17.9	26.4	23.6	24.9	33.3
	S-3	4.8	8.3	18.4	26.1	36.1	42.7	50.3	7.7	16.7	26.0	33.8	34.8
	S-4	5.5	7.5	25.7	36.7	—	47.0	51.3	18.0	27.9	—	27.5	32.5
	Average	3.9	6.8	25.4	36.7	38.0	43.7	52.2	15.0	24.1	24.8	28.4	31.9
	SD	1.4	1.1	4.4	6.5	—	4.7	2.3	4.2	4.4	—	3.3	3.0

*Saussurea lappa* cultivated in Hokkaido for two years were harvested in October 17, 1996 (samples A-1~A-4) and May 9, 1997 (samples S-1~S-4). The taproot was cut into two pieces (upper and lower parts) and were subjected to drying. The 1st order lateral roots were cut according to the diameter and divided into three groups. The cut roots harvested in autumn were dried in the open air and then in greenhouse from October 17, 1996 to March 24, 1997 and finally dried by hot air at 50°C for 24hr. The cut roots harvested in spring were dried in the open air from May 9, 1997 to June 19 and finally dried by hot air at 50°C for 24hr.

<sup>a)</sup> Dil. EtOH : dilute ethanol-soluble extract contents

<sup>b)</sup> Total amounts of fructose and glucose

各々4株掘上げ、秋掘 (A-1~A-4) 及び春掘 (S-1~S-4) 試料とした。各試料を水洗後、各々の根を主根と一次側根に分けた。主根は根頭及びその下の太い部分 (上部) と根先の細い部分 (下部) に横切した。各々の最大根径を Table 1 に示した。側根は最大根径 2 cm 以上、1~2 cm 及び 1 cm 以下の3群に横切した。

秋掘試料は風乾舎内で自然乾燥 (10月17日~11月10日) 後、無加温ハウス<sup>5)</sup> 内で乾燥 (11月11日~1997年1月18日)、さらに、温室内 (40°C以上50°C以下) で乾燥 (1月19日~3月24日) した。春掘試料は風乾舎内で自然乾燥 (5月9日~6月19日) した。各試料は最後に50°Cの温風を24時間当て、仕上げ乾燥した。

試料各群を剪定バサミで5mm角程度に切った後、超遠心粉碎機 (Retsch社製 ZM 1, メッシュスクリーン穴径 1.0 mm 使用) で粉碎、均一化し、分析用試料とした。

## 2. 希エタノールエキス含量

第十四改正日本薬局方生薬試験法・希エタノールエキス定量法<sup>1)</sup> に従った。

## 3. 果糖及びブドウ糖の定量

### 1) 試験溶液及び HPLC の条件

既報<sup>5,6)</sup> の方法を改変し、上記の希エタノールエキス含量測定用エタノール/水混液 (1:1) 抽出液を、以下の条件で分析した。糖含量の表記は、乾燥減量によって得た数値より乾燥重量当たりに換算した。

装置: 日立 L-6200 型高速液体クロマトグラフ, カラム: Asahipak NH2P-50 4E (4.6 φ×250 mm), 移動相: アセトニトリル/水混液 (3:1), 流速: 1.0 mL/分, カラム温度: 40°C, 検出器: 示差屈折計 (エルマー社, ERC-7522), 注入量: 10 μL。

### 2) 標準品

果糖は和光純薬工業<sup>7)</sup> 特級を、ブドウ糖は第一製薬<sup>8)</sup> 日本薬局方品を用いた。

## 4. Costunolide 及び dehydrocostuslactone の定量

### 1) 試験溶液及び HPLC の条件

既報<sup>5,6)</sup> の方法を一部改変した。すなわち、分析用試料 200 mg を精秤し、10 mL のネジ栓付遠沈管に入れ、メタノール 10.0 mL を加えた後、30 分間超音波処理した。遠心分離 (3,000 rpm, 10 分間) 後、上清を以下の条件で分析した。

装置: 島津 LC-10A 型高速液体クロマトグラフ, カラム: Nucleosil 5C18 (4.6 φ×250 mm), 移動相: メタノール/水混液 (60:25), 流速: 1.0 mL/分, カラム温度: 40°C, 検出波長: 215 nm, 注入量: 5 μL。

### 2) 標準品

共に和光純薬工業<sup>7)</sup> 生薬標準品を用いた。

## 結果及び考察

### 1. 希エタノールエキス含量及び糖含量

側根及び主根を各株ごとに根径の太さに応じて分別したのち乾燥し、その希エタノールエキス及び糖含量 (果糖, ブドウ糖) を測定した結果を Table 1 に示した。

各株 (A-1~A-4, S-1~S-4) における根径の太さ別に希エタノールエキス含量を比較すると、側根では秋掘品 A-4 及び春掘品 S-2 を除いて根径が太くなるに従い含量が高くなった。また、主根では、すべての株で太い部位が細い部位を上回った。根径の太さ別に含量の平均値を求めると、株間によるばらつきは認められるものの、側根・主根共に根径が太くなるに従い高くなる傾向にあった。

Table 2 Contents of Costunolide and Dehydrocostuslactone of Saussureae Radix

Harvesttime Sample		Costunolide (%)					Dehydrocostuslactone (%)				
		Lateral root (diameter)			Taproot		Lateral root (diameter)			Taproot	
		<1cm	1-2cm	2cm<	Lower	Upper	<1cm	1-2cm	2cm<	Lower	Upper
Oct. 17, 1996	A-1	0.55	0.69	0.70	0.63	0.70	0.38	0.48	0.50	0.40	0.51
	A-2	0.84	0.95	1.14	0.89	1.46	0.57	0.59	0.62	0.48	0.78
	A-3	0.65	0.94	0.98	0.79	0.80	0.48	0.68	0.69	0.55	0.54
	A-4	0.34	0.67	1.10	0.88	1.00	0.18	0.36	0.66	0.58	0.68
	Average	0.60	0.81	0.98	0.80	0.99	0.40	0.53	0.62	0.50	0.63
	SD	0.18	0.13	0.17	0.10	0.29	0.14	0.12	0.07	0.07	0.11
May 9, 1997	S-1	1.38	1.44	—	0.99	1.41	1.84	1.88	—	1.18	1.94
	S-2	0.95	1.23	1.62	1.38	1.48	1.01	1.38	1.71	1.61	1.67
	S-3	0.95	1.20	1.63	1.59	1.44	0.79	0.99	1.42	1.25	1.36
	S-4	1.17	1.02	—	1.14	0.95	0.90	0.81	—	0.88	0.75
	Average	1.11	1.22	1.63	1.28	1.32	1.14	1.27	1.57	1.23	1.43
	SD	0.18	0.15	—	0.23	0.22	0.41	0.41	—	0.26	0.44

Notes are the same as Table 1.

糖含量を見ると、各株における根径の太さ別糖含量は、側根では秋掘品 A-4 及び春掘品 S-2 を除いて根径が太くなるに従い高くなった。主根では、S-1 を除いて太い部位が細い部位の含量を上回った。根径の太さ別に糖含量の平均値を求めると、側根・主根共に根径が太くなると高くなり、希エタノールエキス含量とほぼ同様な傾向が認められた。

これまでに、デンプンを根に貯蔵するトウキ類<sup>7)</sup>、センキュウ<sup>8)</sup>、ヨロイグサ<sup>9)</sup> は自然乾燥期間中にショ糖含量及び希エタノールエキス含量が経時的に増加することが明らかになっており、両者間には正の相関が認められている。イヌリンを根に貯蔵するモッコウにおいても、自然乾燥期間中に果糖及びブドウ糖が増加し、希エタノールエキス含量も高くなると考えられる。今回、根径が太くなるに従い希エタノールエキス及び糖含量が高くなったのは、太い部位は細い部位に比べ乾燥により多くの時間を要したためと推測された。一方、根径の太さ別試料における希エタノールエキス含量と糖含量間の相関を秋掘品及び春掘品別に調べたところ、高い正の相関が認められ、それぞれの相関係数は、秋掘品  $r=0.906$  ( $n=20$ )、春掘品  $r=0.873$  ( $n=18$ ) であった。なお、主根の各試料における希エタノールエキス含量と最大径について、秋掘品では相関が認められた ( $r=0.854$ ,  $n=8$ ) が、春掘品では相関が認められなかった ( $r=0.443$ ,  $n=8$ )。

## 2. Costunolide 及び dehydrocostuslactone 含量

側根及び主根を各株ごとに根径の太さに応じて分別したのち乾燥し、その精油成分含量 (costunolide, dehydrocostuslactone) を測定した結果を Table 2 に示した。

各株における根径の太さ別 costunolide 含量は、側根では春掘品 S-4、主根では S-3 及び S-4 を除いて根径が太い方が高くなった。根径の太さ別に含量の平均値を求めると、秋・春両収穫時期品ともに側根・主根両方で根径が太

くなるに従い高くなった。

Dehydrocostuslactone については、各株における根径の太さ別含量は、側根では春掘品 S-4、主根では秋掘品 A-3 及び春掘品 S-4 を除いて、根径が太い方が高かった。また、根径の太さ別に含量の平均値を求めると、両収穫時期ともに側根・主根両方で根径が太くなるに従い高くなった。精油を含有する植物には油細胞が見られ、木香では皮層部と木部に散在していることが報告されている<sup>10)</sup>。太い根部ほど両成分含量が高くなるのは、油細胞が存在する皮層部と木部の占める割合が高いためと推測される。

## 3. 部位 (側根, 主根) の比較

部位 (側根, 主根) 及び収穫時期の違いによる希エタノールエキス含量、糖含量及び精油成分量を比較するため、Table 1 及び 2 で得られたデータから各株ごとに側根全体及び主根全体でのそれぞれの平均含量 (総含量/総重量) を算出し、その結果を Table 3 に示した。

秋掘品 (A-1~A-4) の主根及び側根の各種平均含量を比較すると、A-3 の costunolide 及び dehydrocostuslactone 含量を除いて、すべて主根が側根の含量を上回り、希エタノールエキス ( $p<0.01$ ) 及び糖含量 ( $p<0.01$ ) には有意差が認められた。

春掘品 (S-1~S-4) では S-1 ならびに S-4 の costunolide 及び dehydrocostuslactone 含量を除いて、すべて主根が側根の含量を上回り、希エタノールエキス ( $p<0.01$ ) 及び糖含量 ( $p<0.01$ ) には有意差が認められた。

## 4. 秋掘品と春掘品の比較

Table 3 に示すように、側根の希エタノールエキス含量は秋掘品が  $38.5\pm5.7\%$ 、春掘品が  $33.2\pm4.0\%$  と秋掘品の方が高かったが、糖含量は、秋掘品 ( $14.5\pm1.2\%$ ) に対し、有意 ( $p<0.01$ ) に春掘品 ( $21.3\pm1.5\%$ ) が高い値を示した。Costunolide 含量は、秋掘品はすべての試料で 1% 以下であった ( $0.82\pm0.12\%$ ) が、春掘品は 1% を

Table 3 Calculated Contents of Whole Lateral Root and Taproot of *Saussureae Radix* Prepared from 2-Year-old *Saussurea lappa* Cultivated in Hokkaido

Harvesttime Sample		Dil. EtOH (%)		Sugar (%)		Costunolide (%)		Dehydrocostuslactone (%)	
		Lateral root	Taproot	Lateral root	Taproot	Lateral root	Taproot	Lateral root	Taproot
Oct. 17, 1996	A-1	45.7	63.0	15.8	41.4	0.67	0.70	0.47	0.50
	A-2	30.5	55.5	10.4	33.5	0.96	1.40	0.59	0.75
	A-3	36.4	59.7	14.7	34.0	0.92	0.80	0.66	0.54
	A-4	41.5	57.2	14.9	31.4	0.74	0.94	0.42	0.63
	Average	38.5	58.9* <sup>1</sup>	14.5* <sup>2</sup>	35.1* <sup>3</sup>	0.82* <sup>4</sup>	0.96	0.54* <sup>5</sup>	0.61* <sup>6</sup>
	SD	5.7	2.8	1.2	3.8	0.12	0.27	0.09	0.10
May 9, 1997	S-1	37.6	55.2	22.2	26.9	1.42	1.35	1.87	1.84
	S-2	36.7	47.6	22.8	31.3	1.15	1.46	1.26	1.66
	S-3	28.8	48.8	18.8	34.6	1.24	1.47	1.14	1.34
	S-4	29.6	50.2	21.5	33.7	1.12	1.00	0.87	0.78
	Average	33.2	50.5* <sup>1</sup>	21.3* <sup>2</sup>	31.6* <sup>3</sup>	1.23* <sup>4</sup>	1.32	1.29* <sup>5</sup>	1.41* <sup>6</sup>
	SD	4.0	2.9	1.5	3.0	0.12	0.19	0.37	0.40

The average  $\pm$  S.D. of whole lateral root and taproot was calculated from the each value shown in Table 1 and Table 2, respectively, and the individual dry weight. Other notes are the same as Table 1.

\*1, \*2, \*3 and \*4 represent significantly different each other by  $t$ -test ( $p < 0.01$ ).

\*5 and \*6 represent significantly different each other by  $t$ -test ( $p < 0.05$ ).

上回っており ( $1.23 \pm 0.12\%$ ), 有意 ( $p < 0.01$ ) に春掘品が高い値を示した. Dehydrocostuslactone 含量に関しても, 秋掘品はすべての試料で  $1\%$  以下であった ( $0.54 \pm 0.09\%$ ) が, 春掘品は 4 試料中 3 試料で  $1\%$  を上回っており ( $1.29 \pm 0.37\%$ ), 有意 ( $p < 0.05$ ) に春掘品が高い値を示した.

主根の希エタノールエキス含量は, 秋掘品 ( $58.9 \pm 2.8\%$ ) が春掘品 ( $50.5 \pm 2.9\%$ ) より有意 ( $p < 0.01$ ) に高含量であった. 糖含量についても希エタノールエキス含量と同様に, 秋掘品 ( $35.1 \pm 3.8\%$ ) が春掘品 ( $31.6 \pm 3.0\%$ ) より高含量であった. Costunolide 及び dehydrocostuslactone 含量は, 春掘品 (costunolide  $1.32 \pm 0.19\%$ , dehydrocostuslactone  $1.41 \pm 0.40\%$ ) が秋掘品 ( $0.96 \pm 0.27\%$ ,  $0.61 \pm 0.10\%$ ) より高含量であり, dehydrocostuslactone については有意差 ( $p < 0.05$ ) が認められた.

Costunolide 及び dehydrocostuslactone の季節変動については, 米田らの報告<sup>11)</sup>がある. それによると, 両成分とも春から初夏にかけて含量が低下するが, 積雪が見られる時期になると増加し. 冬を越えても含量は大きく変動しなかったと報告している. 今回の実験では, 両成分含量は秋掘品 (積雪の見られない 10 月掘上げ) に比べ春掘品 (翌年 5 月掘上げ) が高く, 米田らの報告と同様の結果が得られた.

## 5. 北海道における木香の調製

北海道において木香を生産するにあたっては, 成分含量の季節変化や調製部位, また, 栽培方法などを総合的に判断する必要がある. さらに, 北海道は冬に積雪があり, 地面も凍結するほど気温も低くなるため, 収穫時期は重要な要素となる.

今回検討した結果, 主根の各種成分含量は側根を上回っ

ていた. また,  $1\text{ cm}$  以下の側根を乾燥したものは脆くて折れやすいうえに成分含量が低く, 市場性の高い木香を調製するには, 主根を用いるのが良いと考えられた.

また, costunolide 及び dehydrocostuslactone 含量は春掘品の含量が秋掘品より高い傾向を示した. 北海道の気象条件を考慮に入れると, 収穫は春に行い, 主根を調製加工するのが適当と考えられた.

なお, 希エタノールエキス含量が高い木香では, 粉碎が困難になることが経験的に知られている<sup>2)</sup>. 本実験で調製加工された主根乾燥品の一部は,  $50\%$  以上の高い希エタノールエキス含量を示した. これらの試料を超遠心粉碎機を用いて粉碎したところ, 黒煙と焦臭を伴い, メッシュスクリーンを塞ぐなど, 容易に粉碎されなかった. 市場においては, 適度な希エタノールエキス含量を有する粉碎の容易な木香が求められており, これらの調製法については別に検討を加えたので改めて報告する<sup>12)</sup>.

本実験を実施した当時, モッコウの栽培法は確立しておらず, 今回実験に用いた根の主根は太く短く, 多数の側根を有していた. その後, 柴田らは栽培法を改良し, 今日では側根の少ない直根性の主根が得られている<sup>13)</sup>. 今回, 主根中の成分含量は細い側根を上回ることが明らかとなったため, 直根性の主根からは成分含量の高い良質な木香が調製される可能性が示唆された. 今後は直根性の主根を用い, 北海道の気象条件に則した調製法の確立に取り組みたい.

## 結 語

直播 2 年生モッコウを秋とその翌春に掘上げ, 主根・側根各々を根径別に分割した後自然乾燥し, 希エタノールエキス, 糖 (果糖, ブドウ糖) 及び精油成分 (costunolide, dehydrocostuslactone) を定量した.

その結果, 各種成分は, 根径の太さに従い含量も高くな

る傾向にあった。希エタノールエキス及び糖含量は、根の乾燥時間の経過と共に増加すること、また、costunolide 及び dehydrocostuslactone は、精油を含有する油細胞が皮層部と木部に散在していることより、太い部分の含量が高くなると推測された。

主根と側根を比較すると、主根の成分含量が高かった。秋掘品と春掘品を比較すると、costunolide 及び dehydrocostuslactone 含量は春掘品が秋掘品より高かったが、希エタノールエキス含量は秋掘品が高かった。

市場性のある北海道産木香を生産するためには、北海道の気象条件も考慮し、春に掘上げ、主根を自然乾燥する方法が望ましいと考えられた。

## 文 献

- 1) 日本薬局方解説書編集委員会編：第十四改正日本薬局方解説書，廣川書店，東京，2001，p.D-503
- 2) 大阪生薬協会生薬懇談会編：生薬の選品と評価Ⅱ，大阪生薬協会，大阪，1995，p.133
- 3) 畠山好雄，熊谷健夫，米田諒典：生薬，43，246（1989）
- 4) 薬用植物栽培・品質評価指針作成検討委員会編：薬用植物栽培と品質評価 Part 9，薬事日報社，東京，2000，p.57
- 5) 姉帯正樹，兼俊明夫，林 隆章，青柳光敏，飯田 修，畠山好雄：Natural Medicines，50(4)，284（1996）
- 6) 青柳光敏，姉帯正樹，兼俊明夫，林 隆章，飯田 修，畠山好雄：道衛研所報，45，21（1995）
- 7) 姉帯正樹，青柳光敏，林 隆章，畠山好雄：道衛研所報，50，6（2000）
- 8) 姉帯正樹，畠山好雄：道衛研所報，51，13（2001）
- 9) 佐藤正幸，青柳光敏，姉帯正樹：道衛研所報，52，83（2002）
- 10) 米田諒典，須磨一夫，山形悦子，畠山好雄，熊谷健夫：生薬，43，59（1989）
- 11) 米田諒典，西 章嘉，前平由紀，畠山好雄，飯田 修：Natural Medicines，48(1)，28（1994）
- 12) 青柳光敏，姉帯正樹，柴田敏郎，畠山好雄：Natural Medicines，59(5)，223（2005）
- 13) 柴田敏郎，成瀬ひとみ，畠山好雄，青柳光敏，姉帯正樹：第49回北海道薬学大会（日本生薬学会北海道支部第26回例会）講演要旨集，44（2002）